

Japanese Patent Publication No. 5-82348

Publication Date: November 18, 1993

Japanese Patent Laid-Open Publication No. 63-21255

Laid-Open Date: January 28, 1988

Japanese Patent Application No. 61-162719

Filing Date: July 10, 1986

Title of the Invention: PROCESS OF MANUFACTURING POWDER BED FOR  
SINTERING CERAMIC SUBSTRATE

Inventor: Masataka MATSUO et al.

Applicant: Harima Refractories Co., Ltd. and Nippon Steel Corp.

#### Claim

1. A process of manufacturing a powder bed for sintering a ceramic substrate characterized in that alumina particles with purity of 98 wt% or more are formed into a molten spherical shape by passing the alumina particles through a flame of a high temperature.

## ⑫ 特許公報(B2)

平5-82348

⑮ Int. Cl.<sup>5</sup>

識別記号

庁内整理番号

⑭ 公告 平成5年(1993)11月18日

C 04 B 35/64

K

発明の数 1 (全4頁)

① 発明の名称 セラミック基板焼成用敷粉の製造方法

② 特 願 昭61-162719

③ 公 開 昭63-21255

④ 出 願 昭61(1986)7月10日

⑤ 昭63(1988)1月28日

⑥ 発 明 者 松 尾 正 孝

福岡県北九州市八幡東区枝光1-1-1 新日本製鐵株式  
会社八幡製鐵所内

⑦ 発 明 者 村 上 角 一

兵庫県高砂市荒井町新浜1丁目3番1号 播磨耐火煉瓦株  
式会社内⑧ 出 願 人 ハリマセラミック株式  
会社

兵庫県高砂市荒井町新浜1丁目3番1号

⑨ 出 願 人 新日本製鐵株式会社

東京都千代田区大手町2丁目6番3号

⑩ 代 理 人 弁理士 大関 和夫

審 査 官 石 井 良 夫

⑪ 参 考 文 献 特開 昭57-95877 (JP, A)

特開 昭56-160380 (JP, A)

特開 昭54-80305 (JP, A)

1

2

## ⑫ 特許請求の範囲

1 純度が98wt%以上のアルミナ粒子を高温火  
炎中に通過させ、熔融球状化することを特徴とす  
るセラミック基板焼成用敷粉の製造方法。

## 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

本発明は、集積回路用セラミック基板の焼成に  
使用される敷粉の製造方法に関する。

(従来の技術)

エレクトロニクス機器の小型化、高性能化に伴  
い、集積回路用セラミック基板(以下セラミック  
基板)はより高品質なものが要求されている。

セラミック基板の焼成には基板同士あるいは基  
板と焼成台との間の焼き付きを防止するために敷  
粉が使用されている。

敷粉の材質は、基板の材質によっても異なる  
が、通常アルミナが常用されている。

(発明が解決しようとする問題点)

従来からこの敷粉としては、パイヤー法焼成ア  
ルミナ、およびこのものを高温で熱処理した焼結  
アルミナ又は熔融アルミナを所定の粒度に調整し

たものが使用されている。

これら敷粉はいずれも粒形が無定形で角ばつて  
おり基板に対して付着しやすく、しかも焼成時の  
基板の収縮に伴ない基板にキズが発生する欠点が  
あつた。

焼成台および基板の間に敷粉を散布する方法と  
して、通常、有機溶剤でスラリー化したものをス  
プレーするか、篩を使用して均一に散布する方法  
などが行なわれている。

しかし、従来の敷粉は粉末自身の流動性が不良  
であるためいずれの散布方法によっても均一な敷  
粉層が得がたく、クボミ発生し、焼成時にこのク  
ボミによる基板の平滑性を維持することが困難で  
あつた。これに加えて、従来の敷粉により基板に  
発生したキズ、クボミ、敷粉の付着等は、研磨に  
よつて平滑にするため、多大なコストを要してい  
た。

一方、数 $\mu m$ の微粒アルミナをスプレードライ  
ヤー等による造粒装置で球状化させた後、これを  
焼成して得られた球状焼結アルミナも敷粉として  
開発された。

この球状焼結アルミナは流動性は良好で安定な散布が可能となり、焼成時の基板のクボミ、敷粉の付着を軽減することに成功した。しかしながら、この敷粉は安定な $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ 構造をとり、焼成時膨張するのに対して基板は収縮するため、基板と敷粉の間に発生する熱膨張収縮応力のためキズの発生を防止することはできなかった。

(問題点を解決するための手段)

本発明者等は、基板のクボミを軽減させるために敷粉を球状にすること、又基板のキズを減少させるために、基板と敷粉の膨張収縮特性を近似させることを目的として、敷粉の一部を活性なアルミナにできないかどうかを種々検討した。

この結果、高温火炎中を通過させ、熔融球状化した球状アルミナには上記特性のあることを追求した。すなわち高温火炎中で液滴となつた球状アルミナの外部は急冷されるため結晶度の低い $\delta$ 型および又は $\gamma$ 型アルミナに、内部は比較的徐冷されるため $\alpha$ 型アルミナとなる。

ここで使用するアルミナ粒子の純度は98wt%以上、好ましくは99wt%以上のものである。アルミナ粒子の純度が98wt%未満では、アルミナ粒子が基板に焼付き、キズが入り易くなるのを防止できない。又、アルミナ原料としては水酸化アルミニウムを800~1650℃、好ましくは1100~1300℃で焼成した活性アルミナ、もしくはこれらを1650℃以上の高温で熱処理した焼結又は熔融アルミナである。

熔融球状化を容易におこなうためには焼結又は熔融アルミナよりも活性アルミナの方が好ましい。

本発明に従って焼成用敷粉としての球状化アルミナを製造するにはアルミナ原料を2000℃以上、好ましく2200~2800℃の火炎中を通過させ熔融球状化する。

高温火炎中へのアルミナ粒子の供給量は、粒子の活性度、粒子径、可燃ガスの種類などに合せて調整しうるものであるが、火炎中における濃度〔粒子供給量(kg)/可燃ガス量(N $\text{m}^3$ )〕は6以下が好ましい。この値が6を超えると球状化が不

充分で敷粉としては不適当である。

本発明でいう高温火炎とは、プロパン、アセチレン、水素等の可燃性ガスと、酸素等との燃焼火炎あるいはHe、Ar、H<sub>2</sub>、N<sub>2</sub>等の不活性ガスを

電離させたプラズマ火炎を意味する。

球形度は真球に近いほど好ましいが、角ばつた部分が熔融してなめらかになつていれば長短径比が1.3以下の形状でもよい。敷粉の用途によつても異なるが、アルミナ粒子の粒径は熔融球状後の寸法で10~150 $\mu\text{m}$ 、好ましくは15~100 $\mu\text{m}$ である。10 $\mu\text{m}$ 未満ではアルミナ粒子がセラミック基板に焼付き、キズが入り易くかつ付着したアルミナ粒子の除去等により作業性が低下する。又アルミナ粒子の均一散布も困難で基板に反りやクボミが生じ易くなる。他方、150 $\mu\text{m}$ 超では敷粉の層厚を一定にすることが容易でなく、従つて基板に反りやクボミが生起する。しかも、熔融球状化し難く基板にキズが入り易くなる。

(実施例)

以下、本発明実施例とその比較例を示す。

(敷粉の製造)

本発明実施例の1~3の敷粉用原料としては $\text{Al}_2\text{O}_3$ の純度が99.5wt%の水酸化アルミニウム100部に対して外掛で有機バインダーのCMCを2%加え、外掛5%の水を加加水し、十分混練した。このものをアムスラー成形機で65×115×115mmの形状に1200kg/cm<sup>2</sup>の圧力にて成形した。この素地を105℃×24Hr乾燥し、ガス炉にて900~1300℃×3Hr焼成した。その後、解砕しアルミナ原料とした。10~88 $\mu\text{m}$ の敷粉を得るために、高温火炎中通過時の熔融収縮を考慮して上記アルミナ原料を20~105 $\mu\text{m}$ に篩分けた。

又、本発明実施例の4、5の敷粉用原料として純度がそれぞれ99.6wt%、99.4wt%の市販の焼結アルミナ、熔融アルミナを15~105 $\mu\text{m}$ に篩分した。

これら5種類のアルミナ原料を、特願昭61-83754号及び特願昭61-83755号に示す無機質球状化粒子の製造装置、即ち頂部に高温火炎及び高純度アルミナ原料を噴射するバーナーを有し、胴部に耐火物壁を有する球状化室と、この球状化室に接続された内部に冷却気体が供給される冷却室からなる球状化粒子の製造装置を用いて球状化した。即ち、前記原料をプロパン1N $\text{m}^3$ に対して44kgとなるように、プロパン-酸素炎中に一定量づつ投入した。このようにして得られた敷粉は外部が $\delta$ 型および又は $\gamma$ 型アルミナ、内部は $\alpha$ 型アルミナで粒径がほぼ10~88 $\mu\text{m}$ である球状となつ

5

6

た。

一方、比較例 6、7 に使用したアルミナ敷粉は次のようにして調整した。焼結アルミナおよび熔融アルミナは前記の市販のアルミナを  $10 \sim 88 \mu\text{m}$  に篩分けて、そのまま敷粉とした。又、比較例 8 の敷粉は平均粒径が  $2.1 \mu\text{m}$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  が 99.5% のバイヤー法アルミナ 100 部に対して外掛で C.M.C を 2wt% 添加したものに、外掛で水を 50% 加水後、スリッパ状態にし、このものを内部温度が  $120^\circ\text{C}$  であるスプレードライヤー内に噴霧して略球形の粉体を得た。このものをロータリーキルンにおいて  $1900^\circ\text{C}$  で焼成し冷却後、 $10 \sim 88 \mu\text{m}$  に篩分、球状焼結アルミナとした。

(セラミック基板の調整)

バイヤー法アルミナ粉末に粒成長防止剤としてマグネシア粉末を 0.2wt% 添加し、これらをアルミナ・ボール・ミルにて平均径が  $0.8 \mu\text{m}$  となるまで粉碎した。この粉末に成形用バインダーを加え混練し、ドクター・ブレード法にて基板用シートを成形した。

(セラミック基板の焼成)

前記のセラミック基板 ( $130 \times 130 \times 0.8 \text{ mm}$ ) を焼成用セッター ( $260 \times 130 \times 5 \text{ mm}$ ) に 10 段に重ね焼成した。敷粉は篩散布にてまずセッター上に、続いて基板間に散布した。焼成はまず、基板の脱バインダーならびに成形時のひずみを除去するために  $300^\circ\text{C} \times 3 \text{ Hr}$  で一段焼成した後、 $1550^\circ\text{C} \times 3 \text{ Hr}$  焼成し、徐冷した。

(敷粉の評価方法)

#### ① キズの発生率

$1 \text{ mm}$  以上の長さのキズが  $80 \times 80 \text{ mm}$  ( $6400 \text{ mm}^2$ ) の基板面積に何個存在するかを SEM によって確認した。

#### ② 敷粉の付着率

$74 \sim 149 \mu\text{m}$  に粒度調整した熔融アルミナをプラスト材として距離  $80 \text{ mm}$ 、角度  $90^\circ$ 、時間 10 秒の条件で  $80 \times 80 \text{ mm}$  の基板面積にプラスト処理後の敷粉の付着個数を SEM にて観察した。

#### ③ クボミの検査

$50 \times 50 \text{ mm}$  の基板面積上に  $50 \mu\text{m}$   $\phi$  以上のへこみヶ所がいくつあるかを SEM にて調査した。本発明実施例 1～5、比較例 6～8 まで上記の試験を行い、表 1 にまとめた。

表 1 に示すように、水酸化アルミニウムを用いた球状アルミナの本発明実施例の 1～3 及び焼結アルミナ、熔融アルミナを用いた球状アルミナの本発明実施例の 4、5 により得られた球状化熔融アルミナの敷粉は流動性が良好であるため、篩散布が容易で基板に対しキズ、付着、クボミの少ない良好な結果を得た。これに対し角ばった焼結および熔融アルミナを使用した比較例 6、7 は基板にキズ、付着、クボミを発生させ、研磨に多大の費用を要した。

一方、スプレードライヤーで球状化した比較例 8 の焼結球状アルミナは付着、クボミは少ないものの基板との熱膨張率の違いにより基板にキズを発生させた。

表

1

特性	本発明実施例					比較例		
	1	2	3	4	5	6	7	8
	球状アルミ ナ水酸化ア ルミニウム 1100°C×3hr	球状アルミ ナ水酸化ア ルミニウム 1200°C×3hr	球状アルミ ナ水酸化ア ルミニウム 1300°C×3hr	球状ア ルミナ	球状ア ルミナ	破碎焼 結アル ミナ	破碎溶 融アル ミナ	球状焼 結アル ミナ
キズの発生率 (ヶ/6400mm <sup>2</sup> )	7	5	8	15	18	35	42	32
敷粉の付着率 (ヶ/6400mm <sup>2</sup> )	15	12	20	32	36	82	74	28
クボミの発 生率 (ヶ/2500mm <sup>2</sup> )	3	2	5	11	14	23	31	7

註 n=10

## (発明の効果)

本発明で得られた球状アルミナを敷粉として使用した場合、次の効果が奏せられる。

- ① 球形度が高いために敷粉の流動性が良好で、20基板上および焼成台への敷粉の散布が均一となる。
- ② 敷粉層が一定の厚みとなるため、焼成時に基

板のクボミ、敷粉の付着を軽減することが可能である。

- ③ 外部がδ型およびγ型アルミナ、内部はα型アルミナの2重構造を有するため、基板と敷粉の熱膨張収縮を近似させることができ、焼成時、敷粉による基板のキズを軽減させる。